

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESEN

Rec'd PCT/PTO 28 APR 2005

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REPLACED BY
ART 34 AMDT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000054012	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/11623	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 21.10.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 28.10.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08F287/00		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.



2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

- ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Bescheids
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 27.02.2004	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 27.01.2005
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl Fax: +31 70 340 - 3016	Bevollmächtigter Bediensteter Hammond, A Tel. +31 70 340-4253 

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

Beschreibung, Seiten

1-22 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-11 eingegangen am 11.11.2004 mit Schreiben vom 09.11.2004

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- | | |
|--------------------------------|---|
| 1. Feststellung | |
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 1-11
Nein: Ansprüche |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche
Nein: Ansprüche 1-11 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-11
Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen:

siehe Beiblatt

Zu Punkt I

Grundlage des Bescheides

1. Der Bescheid ist für die Ansprüche 1-11 (mit Schreiben vom 9/11/04).

Zu Punkt V

Begründete Festellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Festellung

1. In diesem Bescheid ist Dokument D1 genannt ; die Nummerierung wird auch im weiteren Verfahren beibehalten :

D1 WO9807766

2. Erfinderische Tätigkeit

(a) Der Anmeldungsanspruch 1 offenbart ein Verfahren zur Herstellung von schlagzähem Polystyrol durch anionische Polymerisation.

D1 (Zusammenfassung ; Tabelle 3, Beispiele 17,18, 5 ; Seite 5, Zeile 37,38,44,45 - in besonders "Magnesium,Aluminium", "Dibutylmagnesium, Triethylaluminium" ; Seite 6, Zeile 11-36) offenbart auch ein Verfahren zur Herstellung von schlagzähem Polystyrol durch anionische Polymerisation.

Der Unterschied zwischen den Anmeldungsansprüchen und D1 scheint dass D1 ein Magnesiumorganyl, im Vergleich mit Aluminiumorganyl in der Anmeldung, benutzt. Die Prüfungskommission kann sich der Meinung des Anmelders vom 9/11/04 nicht anschliessen.In D1 Seite 17 (nach Schritt 2 von der Anmeldung), scheint es noch lebende Polymere zu geben.

Angesichts D1 scheint die Aufgabe von den Anmeldungsansprüchen ein alternatives Verfahren zur Herstellung von schlagzähem Polystyrol durch anionische Polymerisation. Die Lösung war die Benutzung von einem Aluminiumorganyl.

D1 (in besonders Seite 5, Zeile 44-45 - "Dibutylmagnesium, ..Triethylaluminium, Trimethylaluminium " etc.) offenbart selbstverständlich in diesem Verfahren die Substitution von Magnesiumorganyl mit Aluminiumorganyl, und als Folge kann man sagen dass die Substitution von Magnesiumorganyl mit Aluminiumorganyl eine kleine Variation für den Fachmann scheint, um die Aufgabe als definiert zu lösen.

Als Folge scheint der Gegenstand der Ansprüche 1-11 nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit beruht (Artikel 33(3) PCT).

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von schlagzähem Polystyrol durch anionische Polymerisation, dadurch gekennzeichnet, dass man
- 5
- 1) aus Dienmonomeren, oder aus Dienmonomeren und Styrolmonomeren, durch anionische Polymerisation mit einem Lithiumorganyl als Initiator und unter Mitverwendung eines Lösungsmittels, eine Kautschuklösung herstellt,
- 10
- 2) der erhaltenen Kautschuklösung ein Aluminiumorganyl in einer solchen Menge zufügt, daß das Molverhältnis Aluminium/Lithium in der Kautschuklösung größer als eins ist, bzw. bei Verwendung eines Dialkylaluminiumphenolates als Aluminiumorganyl größer als 0,5 ist,
- 15
- 3) der erhaltenen Lösung Styrolmonomer zufügt,
- 4) der erhaltenen Mischung Lithiumorganyl, oder Lithiumorganyl und Aluminiumorganyl, in einer solchen Menge zufügt, daß das Molverhältnis Aluminium/Lithium in der Mischung kleiner als eins ist, bzw. bei Verwendung eines
- 20
- Dialkylaluminiumphenolates als Aluminiumorganyl kleiner als 0,5 ist, und die Mischung anionisch polymerisiert.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man bei der Herstellung der Kautschuklösung in Stufe 1) keine Verbindungen mitverwendet, die retardierend auf die anionische Polymerisation wirken.
- 25
3. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 2, dadurch gekennzeichnet, dass man als Dienmonomer Butadien und als Styrolmonomer Styrol verwendet.
- 30
4. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass der Kautschuk ausgewählt ist aus Polybutadien und Styrol-Butadien-Blockpolymeren.
5. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass der Styrol-Butadien-Blockcopolymer-Kautschuk mindestens einen Butadienblock mit ei-

nem gewichtsmittleren Molekulargewicht von 50 000 bis 250 000 g/mol enthält.

6. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass der Butadiengehalt des Kautschuks 70 bis 100 Gew.-% beträgt.

5

7. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass der Feststoffgehalt der in Stufe 1) erhaltenen Kautschuklösung 20 bis 40 Gew.-% beträgt.

- 10 8. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass der Feststoffgehalt der in Stufe 3) erhaltenen Mischung 5 bis 25 Gew.-% beträgt.

9. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass das Molverhältnis Aluminium/Lithium der in Stufe 2) erhaltenen Lösung

15 1,01 bis 10 beträgt, bzw. bei Verwendung eines Dialkylaluminiumphenolates als Aluminiumorganyl 0,51 bis 10 beträgt.

10. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass das Molverhältnis Aluminium/Lithium der in Stufe 4) erhaltenen Mischung

20 0,5 bis 0,99 beträgt, bzw. bei Verwendung eines Dialkylaluminiumphenolates als Aluminiumorganyl 0,2 bis 0,49 beträgt.

11. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass man in Stufe 4) vor oder während der Polymerisation weiteres Styrolmonomer zufügt.

25

We claim:

1. A process for preparing impact-modified polystyrene by anionic polymerization, which comprises
 - 5 1) preparing a rubber solution from diene monomers, or from diene monomers and styrene monomers, by anionic polymerization, using an organyllithium compound as initiator, and with concomitant use of a solvent,
 - 10 2) adding, to the resultant rubber solution, an organylaluminum compound, its amount being such that the aluminum/lithium molar ratio in the rubber solution is greater than 1 or, if the organylaluminum compound used comprises a dialkylaluminum phenolate, is greater than 0.5,
 - 15 3) adding styrene monomer to the resultant solution, and
 - 4) adding, to the resultant mixture, organyllithium compound, or organyllithium compound and organylaluminum compound, the amount being such that the aluminum/lithium molar ratio in the mixture is smaller than 1 or, if the
20 organylaluminum compound used comprises a dialkylaluminum phenolate, is smaller than 0.5, and polymerizing the mixture anionically.
2. A process as claimed in claim 1, wherein, during the preparation of the rubber
25 solution in stage 1), no concomitant use is made of compounds which have a retarding action on the anionic polymerization.
3. A process as claimed in claim 1 or 2, wherein the diene monomer used comprises butadiene and the styrene monomer used comprises styrene.
- 30 4. A process as claimed in any of claims 1 to 3, wherein the rubber has been selected from polybutadiene and styrene-butadiene block polymers.
5. A process as claimed in any of claims 1 to 4, wherein the styrene-butadiene block
35 copolymer rubber contains at least one butadiene block with a weight-average molar mass of from 50 000 to 250 000 g/mol.

6. A process as claimed in any of claims 1 to 5, wherein the butadiene content of the rubber is from 70 to 100% by weight.
- 5 7. A process as claimed in any of claims 1 to 6, wherein the solids content of the rubber solution obtained in stage 1) is from 20 to 40% by weight.
8. A process as claimed in any of claims 1 to 7, wherein the solids content of the mixture obtained in stage 3) is from 5 to 25% by weight.
- 10 9. A process as claimed in any of claims 1 to 8, wherein the aluminum/lithium molar ratio of the solution obtained in stage 2) is from 1.01 to 10 or, if the organylaluminum compound used comprises a dialkylaluminum phenolate, is from 0.51 to 10.
- 15 10. A process as claimed in any of claims 1 to 9, wherein the aluminum/lithium molar ratio of the mixture obtained in stage 4) is from 0.5 to 0.99 or, if the organylaluminum compound used comprises a dialkylaluminum phenolate, is from 0.2 to 0.49.
- 20 11. A process as claimed in any of claims 1 to 10, wherein further styrene monomer is added in stage 4) prior to or during the polymerization.
- 25 12. An impact-modified polystyrene obtainable by the process as claimed in any of claims 1 to 11.
13. The use of the impact-modified polystyrene as claimed in claim 12 for producing moldings, films, fibers, or foams.
- 30 14. A molding, a film, a fiber, or a foam made from impact-modified polystyrene as claimed in claim 12.